HOKKAIDO UNIVERSITY

| | |
|---|---|
| Title | 動的光散乱における光放射圧の影響：双極子近似に基づく解析とシミュレーション |
| Author(s) | 原田，康浩；山下，達弥；朝倉，利光 |
| Citation | 電子科学研究，3，78-82 |
| Issue Date | 1996-01 |
| Doc URL | https://hdl.handle.net/2115/24353 |
| Type | departmental bulletin paper |
| File Information | 3_P78-82.pdf |

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

# 動的光散乱における光放射圧の影響
## ── 双極子近似に基づく解析とシミュレーション ──

光システム計測研究分野　原　田　康　浩，山　下　達　弥，朝　倉　利　光

基本モードのガウスビームレーザー光の放射圧を解析的に与える計算式を，微粒子を局在誘起電気双極子と見なす近似の範囲で導出し，その正当性をMaxwellの方程式に基づく理論計算の結果と比較して検討した。その結果に基づいて，照射レーザー光の放射圧が作用するブラウン運動微粒子の時空間的挙動，すなわち放射圧下のブラウン運動微粒子からの動的散乱光強度の時間相関関数をFokker-Planck方程式の近似的解析解として導出するとともに，散乱光強度を計算機によって生成して時間相関関数を評価し，照射レーザー光の出力との関係について調べた。

## 1．はじめに

液体中にミクロンあるいはサブミクロンオーダーの微粒子が懸濁した系では，微粒子は系の熱力学的・流体力学的条件の反映としてランダムなブラウン運動を行う。動的光散乱法とは，このような系にレーザー光を照射し，微粒子のランダムな位置変動，すなわち系の動的挙動を散乱光のゆらぎとして検出し，その時間相関関数の緩和時間（相関時間）から系の動的構造，拡散定数，微粒子径等を測定する方法であり，光による非破壊・非接触測定の利点を生かして生体高分子，電解質溶液，液晶，微生物運動，コロイド溶液などを対象として広く用いられている[1]。

散乱光の時間相関関数と微粒子の挙動との関係をより具体的に表すと，散乱光電場および散乱光強度の規格化された時間相関関数は，それぞれ

$$g^{(1)}(q,\tau)=\frac{\langle E_s(q,t)E_s^*(q,t+\tau)\rangle}{\langle E_s(q,t)E_s^*(q,t)\rangle}=\langle\exp[iq\cdot\{r_j(t)-r_j(t+\tau)\}]\rangle \quad (1)$$

$$g^{(2)}(q,\tau)=\frac{\langle I_s(q,t)I_s(q,t+\tau)\rangle}{\langle I_s(q,t)\rangle^2}=1+|g^{(1)}(q,\tau)|^2 \quad (2)$$

となる[1,2]。ここで $q$ は散乱ベクトルで，その大きさは $q=(4\pi n_2/\lambda_0)\sin(\theta/2)$ で与えられ，$\lambda_0$ は真空中の光の波長，$n_2$ は溶媒の屈折率，$\theta$ は散乱角である。$r_j(t)$ は，時刻 $t$ における散乱体積中の典型的な微粒子の位置を表すランダムな確率変数である。式(1)はこの確率変数に関する特性関数を与えており，散乱光電場の時間相関関数が散乱微粒子の時空間的な存在確率密度 $c(r;t,t+\tau)$ の空間Fourier変換で与えられることを意味している。ブラウン運動粒子の存在確率は拡散方程式の解としてガウス型の関数で与えられる。したがって，散乱光電場および光強度の時間相関関数は単一の負指数関数となり，その相関時間から拡散定数や粒子径を決めることができる[1]。

しかし，動的光散乱によるセンシングにおいては照射レーザー光の放射圧が微粒子に作用するため，相関関数には長時間相関の増大（相関時間の増加）や単一負指数関数からの逸脱としてその影響が現れ，これらの変化は粒子径が大きい程大きくなるとの観測結果が得られおり[3]，放射圧を含めた動的光散乱理論の再構築が求められている。この場合，微粒子の挙動は放射圧 $F(r)$ を含めた拡散方程式

$$\frac{\partial}{\partial t}c(r,t)=D\nabla^2c(r,t)-\frac{D}{k_BT}\nabla\cdot[F(r)c(r,t)] \quad (3)$$

で与えられるFokker-Planck方程式[4]（$D$：微粒子の拡散定数，$k_B$：Boltzmann定数，$T$：溶媒の絶対温度）によって支配され，この偏微分方程式の解を導出

してその空間 Fourier 変換を求めることで散乱光の時間相関関数に現れる光放射圧 $F(r)$ の影響を調べることできる。ここでは，その過程で必要不可欠な放射圧 $F(r)$ の計算式を微粒子を局在電気双極子と見なす近似の範囲で解析的に導出し[5]，その正当性を Maxwell の方程式に基づくレーザービームの光散乱理論（一般化 Lorenz-Mie 理論，GLMT）[6] の結果と比較して検討した。次に，その結果に基づいて，式(3)の解析的近似解を導出するとともに微粒子の挙動ならびに散乱光を計算機によって生成し，散乱光の時間相関関数に現れる放射圧の影響を解析的な手法とシミュレーションによる方法の二つによって調べた。

## 2．双極子近似による光放射圧[5]

図1に示すように　電場ベクトル $E(r,t)$ が $x$ 軸方向に直線偏光し $+z$ 向きに進行するスポットサイズ $w_0$ の基本モードガウスビーム光によって，屈折率 $n_2$ の媒質中に存在する屈折率 $n_1$，半径 $a$ の誘電体微小球を照明する場合を考える。$a \ll \lambda_0/n_2$ の場合，微粒子の大きさにわたり電場ベクトルの値は一様と考えることができ，一様電場中の誘電体球の振る舞いを考える問題としてとらえることができる。すなわち，静電気理論とのアナロジーから，微粒子は次式の双極子モーメントをもつ誘起電気双極子が中心点に局在しているとみなすことができる[7,8]。

$$p(r,t) = 4\pi n_2^2 \varepsilon_0 a^3 \left(\frac{m^2-1}{m^2+2}\right) E(r,t) \tag{4}$$

ここで $\varepsilon_0$ は真空の誘電率，$m = n_1/n_2$ は微粒子の相対屈折率である。光の周波数で振動するこの双極子モーメントは，周囲に2次的な放射場，すなわち散乱場を形成する。光散乱現象を双極子による2次放射として扱った理論が Rayleigh の散乱理論であり，上述の双極子近似は Rayleigh 散乱近似とも呼ばれる。光散乱によって生じた照射レーザー光の運動量の減少分は散乱体である微粒子に伝達され，微粒子に光放射圧として作用する。この成分は散乱力と呼ばれ，Rayleigh の散乱理論から次式で与えられる[8]。

$$F_{\mathrm{scat}}(r) = \hat{z}\,\frac{n_2}{c}\,\frac{8}{3}\,\pi (ka)^4 a^2 \left(\frac{m^2-1}{m^2+2}\right)^2 I(r) \tag{5}$$

ここで，$c$ は真空中の光の速さ，$k = 2\pi n_2/\lambda_0$ と $I(r)$ はそれぞれ照明光の波数と強度分布（照度分布）である。一方，電荷に作用する静電場の作用と等価的に，双極子モーメントには

$$\begin{aligned} F_{\mathrm{grad}}(r) &= \langle [p(r,t)\cdot\nabla] E(r,t) \rangle_{\mathrm{T}} \\ &= \frac{2\pi n_2 a^3}{c}\left(\frac{m^2-1}{m^2+2}\right)\nabla I(r) \end{aligned} \tag{6}$$

で表される Lorentz 力が作用する[7]。これは光強度の空間勾配に比例するので一般的に勾配力と呼ばれる。規格化した空間座標 $(x/w_0,\ y/w_0,\ z/kw_0^2)$ と出力 $P$ を用いて基本モードのガウスビームの強度分布を

$$I(r) = \frac{2P}{\pi w_0^2}\,\frac{1}{1+(2\tilde{z})^2}\exp\left[-\frac{2(\tilde{x}^2+\tilde{y}^2)}{1+(2\tilde{z})^2}\right] \tag{7}$$

と表すと，勾配力の各直交成分の計算式は以下の通り導出できる[5]。

$$\begin{aligned} F_{\mathrm{grad},x}(r) &= \frac{2\pi n_2 a^3}{c}\left(\frac{m^2-1}{m^2+2}\right) \\ &\quad \times \left[\frac{-4\tilde{x}/w_0}{1+(2\tilde{z})^2}\right] I(r) \end{aligned} \tag{8}$$

$$\begin{aligned} F_{\mathrm{grad},y}(r) &= \frac{2\pi n_2 a^3}{c}\left(\frac{m^2-1}{m^2+2}\right) \\ &\quad \times \left[\frac{-4\tilde{y}/w_0}{1+(2\tilde{z})^2}\right] I(r) \end{aligned} \tag{9}$$

$$\begin{aligned} F_{\mathrm{grad},z}(r) &= \frac{2\pi n_2 a^3}{c}\left(\frac{m^2-1}{m^2+2}\right)\left[\frac{-8\tilde{z}/(kw_0^2)}{1+(2\tilde{z})^2}\right] \\ &\quad \times \left[1-\frac{2(\tilde{x}^2+\tilde{y}^2)}{1+(2\tilde{z})^2}\right] I(r) \end{aligned} \tag{10}$$

図2および図3は，$m = 1.592/1.332$，$\lambda_0 = 514.5$ nm，$w_0 = 5\,\mu$m，$P = 100$ mW の条件もとで，それぞれ式(5)と(10)から算出した放射圧のビーム伝播成分と，式(8)から算出した横断面成分の空間分布を示す。粒子の半径はそれぞれ，(a) $a = 0.01\,\mu$m，(b) $a = 0.1\,\mu$m であり，後者は双極子近似で仮定する粒子径の条件($a$

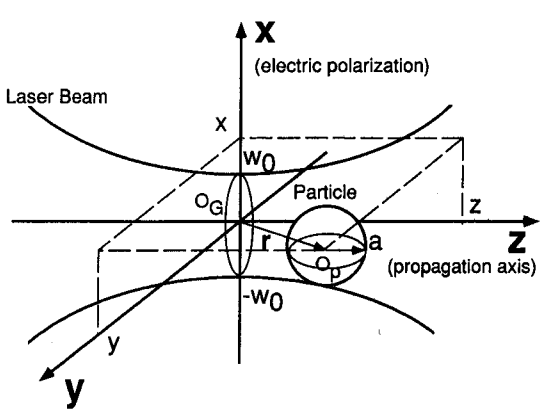


図1　基本モードガウスビーム照明での光学配置.

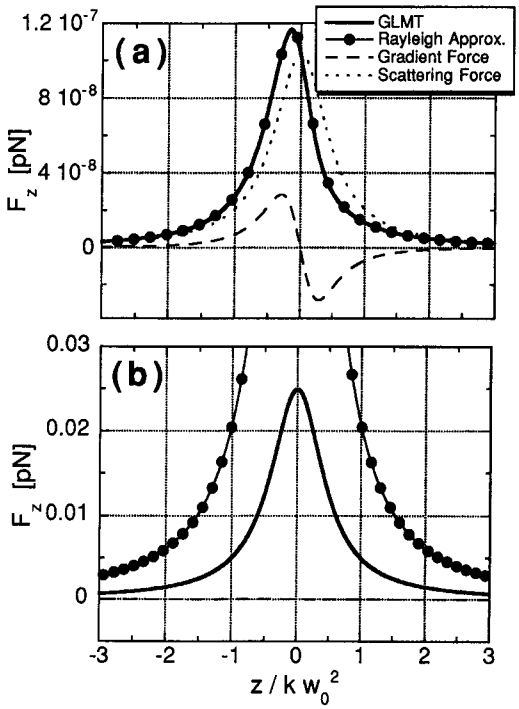


図2　放射圧のビーム伝播軸成分の空間分布．(a) $a = 0.01\,\mu$m，(b) $a = 0.1\,\mu$m．

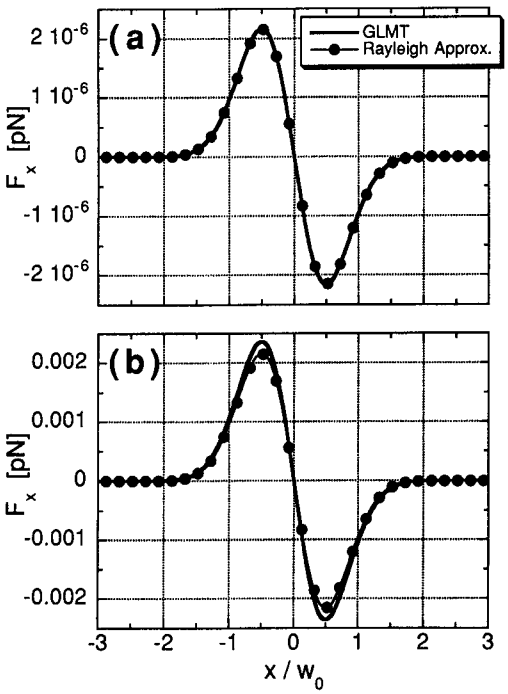


図3　放射圧のビーム横断面成分の空間分布．(a) $a = 0.01\,\mu$m，(b) $a = 0.1\,\mu$m．

$\ll\lambda$）を満足しない。図中の太い実線は，GLMT[6] による理論結果であるが，粒子径が波長に比較して十分小さい場合（図2(a)，図3(a)）は，各成分とも非常に良く一致しており，ここで導出した計算式がその係数も含めて正しいことが確認できる。また，ビーム伝播軸成分が微粒子をその正の向きに加速する力として作用するのに対し，ビーム横断面成分は常にビームウェストの中心点に引き戻す保存力として作用することを表している。すなわち，ブラウン運動によるランダムな微粒子の位置変動は，勾配力成分によってビーム横断面内で抑制されることを意味している。

一方，粒子半径が波長と同程度の場合においても，ビーム横断面成分で良好な一致が見られることは興味深い（図3(b)）。これは，散乱に伴う光の運動量変化，すなわち散乱力が横断面方向には寄与せず，Rayleigh の光散乱理論の成立条件には関係しないことを意味している。粒子半径を増大させて調べた結果，粒子半径が照射ビームのスポットサイズと同程度となるまで式(8)による結果が良い一致を与えることが明らかとなった[5]。これは，勾配力成分では微粒子の大きさにわたる照射光電場の一様性の成立が重要な条件であることを意味している。動的光散乱法での照明光ビームの条件を考える場合，式(3)に取り込むべき放射圧の表式として，式(8)−(10)の勾配力の計算式は広い粒子径にわたって採用することができ，有効であると結論できる。

## 3．散乱光強度の時間相関関数

放射圧下の微粒子分散系からの散乱光の時間相関関数を調べるとき，散乱体積 $V$ が観測光学系によって照射レーザービームのウェスト近傍に限定されるとする（$V \simeq w_0^3$）。この場合，前節の結果から，式(3)中で放射圧 $F(\boldsymbol{r})$ が関与する項は

$$F(\boldsymbol{r}) \simeq F_{\mathrm{scat}}(0) \tag{11}$$

$$\nabla\cdot F(\boldsymbol{r}) \simeq [\nabla\cdot F_{\mathrm{grad}}(\boldsymbol{r})]_{\boldsymbol{r}=0} \tag{12}$$

で近似することができる。

すなわち，ビーム伝播方向には主に一定の散乱力が作用し，横断面内では一定の係数をもつ復元力（勾配力）が作用するとみなす。その結果，Fokker-Planck 方程式は定数係数の偏微分方程式となり，その空間 Fourier 変換面における解より，散乱光強度ゆらぎの時間相関関数は

$$g^{(2)}(q,\tau)-1=|g^{(1)}(q,\tau)|^2$$
$$=\exp\left[-\left\{2q^2D-2\frac{D}{k_BT}[\nabla\cdot F_{\mathrm{grad}}(\boldsymbol{r})]_{r=0}\right\}\tau\right] \tag{13}$$

として得られる。図4(a)は，$T=293\,\mathrm{K}$，$m=1.59/1.33$，$\lambda_0=514.5\,\mathrm{nm}$，$w_0=5\,\mu\mathrm{m}$，$a=0.5\,\mu\mathrm{m}$，$\theta=30^\circ$ の条件で，式(8)−(10)および式(13)から算出した散乱光強度の規格化相関関数を示す。照射レーザーの出力が増加するに従って，長時間の相関値が増大し相関時間も大きくなることがわかる。しかしながら，実験的に観測された単一負指数関数からの逸脱という現象は表現できていない。また，比較的低いレーザー出力で，微粒子のブラウン運動が凍結され，散乱光強度ゆらぎの相関が減衰しなくなる。これは，式(12)の0次近似によって放射圧を過大評価するとともに散乱体積中の微粒子の挙動を空間的に定常とする放射圧を考えているからである。

一方，Fokker-Planck 方程式(3)において，時間発展の刻み $\Delta t$ を熱的揺動力による微粒子位置変動の時間スケール程度に細分化すると，微粒子の位置変化は

$$r_j(t+\Delta t)=r_j(t)+R_c(\Delta t)+\frac{D}{k_BT}F\{r_j(t)\}\Delta t \tag{14}$$

で与えることができる[9]。ここで，$R_c(\Delta t)$ は溶媒分子の熱的な揺動力による $\Delta t$ 間の微粒子拡散変位であり，平均値がゼロ，分散が $6D\Delta t$ のガウス型確率密度関数に従う確率変数である。したがって，$R_c(\Delta t)$ を計算機上で生成するとともに対応する空間座標 $r_j(t)$ での放射圧による並進変位を計算すれば，一連の時刻での個々の微粒子の位置ベクトルを計算できる。また，散乱光電場と強度は，ある時刻での散乱体積内に存在する全ての微粒子からの散乱光波の重ね合わせとして，$E_s(q,t)=\sum_j\exp[iq\cdot r_j(t)]$ および $I(q,t)=|E_s(q,t)|^2$ で計算でき，最終的に式(2)に基づいて散乱光強度の時間相関関数 $g^{(2)}(q,\tau)$ が評価できる。図4(b)は(a)と同じ条件のもとで，この手法により得られた相関関数を示している。この場合は，レーザー出力の増加に伴って単一負指数関数から次第に外れていく様子が良く再現されている。また，比較的高いレーザー出力でも完全に散乱光強度の変動が消滅しない結果が得られており，シミュレーションによる解析の有効性が確認できる。

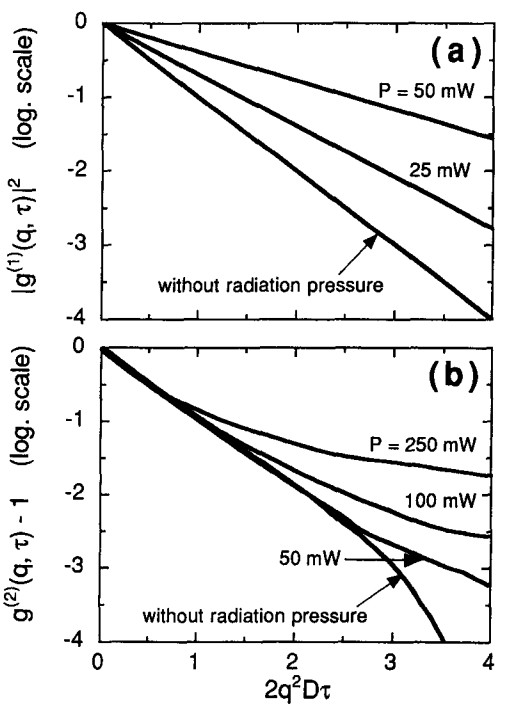


図4　散乱光強度の時間相関関数のレーザー出力依存性．(a)解析的近似解，(b)計算機シミュレーション．

## 4．おわりに

微粒子に作用する放射圧の計算式を，微粒子を局在電気双極子とみなす近似の範囲で導出し，それが正当であることを示した。さらに，その計算式を用いて放射圧下のブラウン運動微粒子からの散乱光の時間相関関数の特徴を調べた。近似的解析解による時間相関関数は放射圧を0次近似で与えるために実験結果を忠実に再現し得ないのに対し，計算機シミュレーションではその欠点を回避でき，相関関数の特徴解析に有効であることを示した。本研究は，放射圧という光の力学的作用に対する系の応答をも含めた光センシング法を展開する上での基礎を成すものであり，今後は，相関時間の解析や Cumulant 解析など生成される相関関数の定量的な評価と粒子サイズや散乱角度との関係の解明や，対応する実験データの収集を進めていく。

## 【参考文献】


[1] B. J. Berne and R. Pecora, *Dynamic Light Scattering* (Wiley, New York, 1976).

[2] B. Chu, *Laser Light Scattering* (Academic, New York, 1991).

[3] Y. Harada and T. Asakura, Opt. Commun. **107**, 161 (1994).

[4] D. Rogovin and S. O. Sari, Phys. Rev. A **31**, 2375 (1985).

[5] Y. Harada and T. Asakura, Opt. Commun. (1996) (to be published).

[6] G. Gouesbet, B. Maheu, and G. Gréhan, J. Opt. Soc. Am. A **5**, 1427 (1988).

[7] J. A. Stratton, *Electromagnetic Theory* (McGraw-Hill, New York, 1941), pp. 175-176, 205-207.

[8] M. Kerker, *The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation* (Academic, New York, 1969).

[9] D. L. Ermak, J. Chem. Phys. **62**, 4189 (1975).